

大気球観測により初めて捉えられた成層圏大気主成分の重力分離と その中層大気循環研究への応用

石戸谷重之^{*1} 菅原敏^{*2} 森本真司^{*3} 青木周司^{*3} 中澤高清^{*3}
豊田栄^{*4} 本田秀之^{*5} 橋田元^{*6} 村山昌平^{*1} 山内恭^{*6}

Gravitational separation of major atmospheric components in the stratosphere observed using a balloon-borne cryogenic air sampler and its application to the middle atmospheric circulation study

By

Shigeyuki ISHIDOYA^{*1}, Satoshi SUGAWARA^{*2}, Shinji MORIMOTO^{*3}, Shuji AOKI^{*3},
Takakiyo NAKAZAWA^{*3}, Sakae TOYODA^{*4}, Hideyuki HONDA^{*5}, Gen HASHIDA^{*6},
Shohei MURAYAMA^{*1} and Takashi YAMANOUCHI^{*6}

Abstract

Gravitational separation of major atmospheric components in the stratosphere was detected firstly, from our high-precision measurements of O₂/N₂, Ar/N₂ and the isotopic ratios of N₂, O₂ and Ar for the air samples collected using a balloon-borne cryogenic sampler. The relationships between the measured variables agree well with those expected from gravitational separation but clearly differ from those expected from artificial fractionation due to thermal diffusion. Simulations with a 2-dimensional model showed that a relationship between gravitational separation and the age of air in the stratosphere would be significantly affected by changes in the Brewer-Dobson circulation, which indicated gravitational separation is usable as a new indicator of the stratospheric circulation. In this paper, we review the past studies about gravitational separation in the middle atmosphere as well as changes in the Brewer-Dobson circulation briefly, and then summarize the above findings and suggestion presented in our recent papers.

Keywords: Gravitational separation of atmospheric components, Balloon-borne cryogenic air sampler, Changes in the Brewer-Dobson circulation

概 要

大気球に搭載したクライオジェニックサンプラーを用いて採取された大気試料の大気主成分濃度および安定同位体比の高精度測定により、成層圏における大気主成分の重力分離が初めて検出された。測定された各観測値の間の関係は重力分離から予測される測定対象分子の質量数に比例した関係と一致し、空気取入口の日射加熱による熱拡散等の観測上の問題から生じる関係とは明らかに異なる値を示した。Brewer-Dobson 循環の変動に伴って重力分離と成層圏空気の年齢の関係が大きく変動することが2次元大気化学輸送モデルを用いたシミュレーションから明らかになり、重力分離が成層圏大気循環研究における新たな指標となり得ることが示された。本稿では中層大気の重力分離と Brewer-Dobson 循環の変動に関する過去の研究例を短評した後、我々の最近の論文で報告された上記の成果をとりまとめて報告する。

^{*1} 産業技術総合研究所 (National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST))

^{*2} 宮城教育大学 (Miyagi University of Education)

^{*3} 東北大学 (Tohoku University)

^{*4} 東京工業大学 (Tokyo Institute of Technology)

^{*5} 宇宙航空開発研究機構・宇宙科学研究所 (Institute of Space and Astronautical Science (ISAS), Japan Aerospace Exploration Agency (JAXA))

^{*6} 国立極地研究所 (National Institute of Polar Research)

1. はじめに

地球大気は地球の重力により宇宙空間への散逸を免れて保持されている。重力場の中に存在する各種の大気分子はその質量数に応じたスケール高度を持ち、分子の運動が分子拡散のみに起因する静水圧平衡の状態では、質量数のより大きい分子はより小さい分子と比較して、低高度における存在比が大きくなる。重力に起因したこのような大気成分の拡散分離は重力分離と呼ばれている。現実の対流圏および成層圏大気では、質量数によらない渦拡散的な輸送による効果が重力分離効果より $10^6 \sim 10^3$ 倍と圧倒的に大きいことから、重力分離が大気現象として意味を持つのは乱流圏界面高度（ ~ 100 km）以上の超高層大気中のみであると考えられてきた（e.g. Jacobs, 1999）。一方、我々の研究グループでは1985年以来、大気球に搭載したクライオジェニックサンプラー（Honda et al., 1996）を用いた成層圏大気の大量採取実験を継続し、成層圏における CO_2 濃度等大気微量成分の濃度・同位体比の高精度観測から（e.g. Nakazawa et al., 1995; Aoki et al., 2003）、成層圏大気循環の変動に関する研究を推進している。そこで我々のグループでは、クライオジェニックサンプラーにより採取した成層圏大気試料の大気主成分（ O_2 、 N_2 および Ar）の濃度および同位体比を超高精度で分析することで、約 30 km 以下の高度における大気成分の重力分離を観測するという前例のない課題に取り組んできた（Ishidoya et al., 2006; 2008a）。その結果、成層圏においても検出可能な重力分離が存在することの確実な証拠を得るとともに、重力分離に基づいて成層圏大気循環の経年変動を検出する手法も併せて提唱した（Ishidoya et al., 2013）。本稿ではまず研究の背景として、大気成分の重力分離と成層圏大気循環に関する近年のいくつかの研究について短評することにより、現在の中層大気研究における課題を明らかにする。その後に、Ishidoya et al. (2006, 2008a, 2013) によって報告された我々の研究による新知見をとりまとめて報告する。

2. 背景

2.1. 乱流圏界面以下の高度における大気成分の重力分離に関する過去の研究例

重力分離が生じないと考えられてきた乱流圏界面以下の高度において、分子拡散による大気成分の分離の影響を検出した研究例として、Chabrilat et al. (2002) が挙げられる。彼等の研究では、Offerman et al. (1981) による質量分析計を搭載したロケット観測等で報告された中間圏上部の CO_2 濃度データを取りまとめ、重力分離の原因となる分子拡散の寄与が含まれた2次元大気化学輸送モデル（SOCRATES）（e.g. Huang et al., 1998）を用いてそのシミュレーションを行なった（図1）。シミュレーションとして、分子拡散、渦拡散および光分解の寄与を全て含んだ Baseline 計算、分子拡散および光分解の寄与をそれぞれ無視した計算、さらに鉛直渦拡散係数を初期値から倍増および半減させた計算が行なわれた。

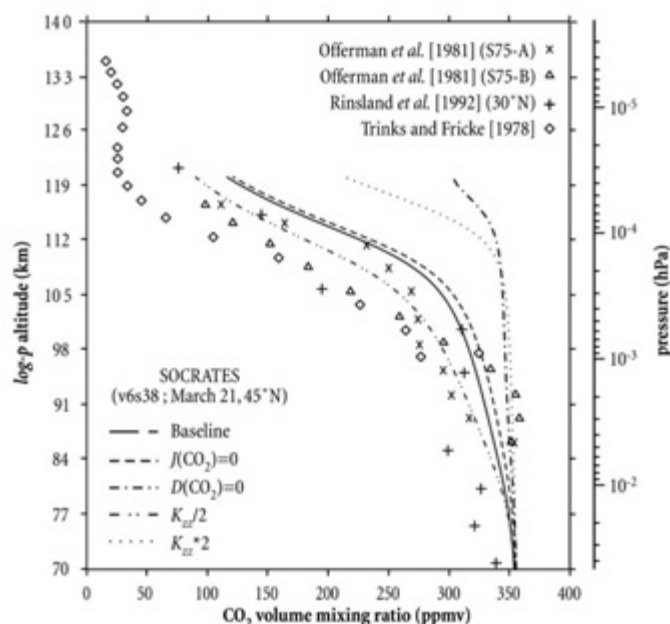


図1 観測および2次元モデルによるシミュレーションから得られた、春分時の中緯度上空における大気中 CO_2 濃度の高度分布（Chabrilat et al. (2002) の Figure 2 より引用）。Baseline は分子拡散、渦拡散および光分解の寄与を全て含んだ場合、 $J(\text{CO}_2)=0$ は光分解の寄与を無視した場合、 $D(\text{CO}_2)=0$ は分子拡散の寄与を無視した場合、 $K_{zz}/2$ および $K_{zz}*2$ は鉛直渦拡散係数を初期値から半減および倍増させた場合の結果結果をそれぞれ示す。

その結果、図 1 に示されたように、Baseline 計算、光分解の寄与を無視した計算、鉛直渦拡散係数を半減させた計算による結果はいずれも観測された高度上昇に伴う CO₂ 濃度の減少を比較的良好に再現し、一方で分子拡散の寄与を無視した場合の計算結果は、観測された CO₂ 濃度の高度減少を再現できなかった。このことから、高度 80 km の中間圏界面以上の高度では、大気成分濃度の高度分布に対する重力分離の寄与が無視できなくなることが示唆される。ただし Chabrilat et al. (2002) で用いられている分子拡散係数には、重力分離に加えて温度勾配による分子の熱拡散の効果も含まれており、彼等の論文の中ではそれぞれの寄与量は明示されていない。

中間圏界面よりもさらに下層の高度における重力分離を検討した例としては、Bieri et al. (1970) による、ロケット搭載型クライオジェニックサンプラーを用いた観測が挙げられる。Bieri et al. (1970) は、高度 43.6 – 62.3 km の上部成層圏～下部中間圏において採取した大気試料の Ne、Ar および Kr の濃度および同位体の分析を行なったが、有意な重力分離は検出されなかった。以降、我々の研究まで、下部中間圏以下の高度において重力分離が観測された例はない。なお上述の Chabrilat et al. (2002) により報告された高度約 80 km の領域では、CO₂ 濃度が分子拡散の寄与でおよそ 10 ppm 減少していることが見て取れるが、同高度での分子拡散係数は渦拡散係数の約 20 分の 1 の大きさである。一方で成層圏での分子拡散係数の大きさは渦拡散係数の 1000 分の 1 以下であり、重力分離が生じていたとしてもその変動量は CO₂ 濃度にして 0.1–0.2 ppm であることが予測され、それよりはるかに大きい自然変動が CO₂ 濃度には重畳することから、成層圏における CO₂ 濃度の観測から重力分離のシグナルを捉えるのは不可能と言える。従って、成層圏における重力分離を捉えるためには、大気中での存在量に対して自然起源の変動量が極めて小さい成分の変動量を、超高精度で観測する必要がある。

このような目的を達成するための計測技術として、Keeling (1988) により初めて開発された、大気中 O₂ 濃度 (O₂/N₂ 比) の 6 桁目の変動を計測する高精度計測法が挙げられる。Keeling (1988) では分子拡散と渦拡散を考慮した定常 1 次元モデル (Lettau, 1951) を用いて成層圏における O₂ 濃度の高度分布の試算も行っており、化石燃料消費による対流圏における O₂ 濃度の経年減少 (e.g. Manning and Keeling, 2006) を考慮しても、成層圏の O₂ 濃度高度分布に対する分子拡散の寄与による重力分離の影響が、高精度観測によって検出され得ることを示唆した。我々のグループでも O₂ 濃度等の大気主成分濃度・同位体比の高精度観測システムの開発を推進しており (Ishidoya et al., 2003; Goto et al., 2013; Ishidoya and Murayama, 2014)、かつ大気球実験により世界で最も高品質の成層圏大気試料を継続的に採取していることから (e.g. Nakazawa et al., 1995)、世界に先駆けて成層圏における大気成分の重力分離を探索し得る研究体制が確立されていると言える。

2.2. 中層大気循環の経年変動と気候変動との関係に関する過去の研究例

重力分離の大きさは、静水圧平衡状態に向かう分子拡散の効果と、渦拡散的な輸送の効果とのバランスで決まる。従って、もし成層圏大気成分の重力分離の変動を高精度で観測することができれば、中層大気循環の変動に関する新たな情報が得られると期待される。中層大気循環の経年的な変動に関しては、近年、地球温暖化との関連において関心が高まっている。温暖化の進行に伴い、熱帯域の上昇流によって対流圏大気が成層圏に流入する量が増加し、中層大気の子午面循環 (Brewer-Dobson 循環 : BDC) が強化されることが多くの気候モデルから予測されている (e.g. Li et al., 2008)。これらのモデル予測を支持する観測結果として、Kawatani and Hamilton (2013) は 1953–2012 年の期間における熱帯域でのラジオゾンデ観測のデータをまとめ、70 hPa (～ 19 km 高度) において成層圏準 2 年振動 (quasi-biennial oscillation : QBO) の振幅が経年的に有意に減少していることを見出し、その傾向が、温暖化シナリオによって熱帯下部成層圏における上昇流が強化することを示しているほとんどの気候モデルの予測と整合的であることを報告した。

一方でこのような Brewer-Dobson 循環の経年的な強化が生じた場合には、循環が早くなり対流圏-成層圏交換の時間が短くなることが予想され、成層圏に存在する大気がかつて熱帯対流圏から切り離されてから経過した平均的な時間を示す mean age が経年的に減少することが予測されている (e.g. Austin and Li, 2006)。しかしながら Engel et al. (2009) によって報告された、過去 30 年間の大気球観測から得られた mean age をとりまとめた結果からは、24 km 以上の高度の中部成層圏において、mean age の有意な経年変動は検出されなかった (図 2)。そのため、熱帯域における上昇流は強化されているにも関わらず、中部成層圏では Brewer-Dobson 循環の強化が生じていない可能性がある。Ray et al. (2010) では、Tropical leaky pipe (TLP) モデルを用いることにより、Engel et al. (2009) で報告されたような過去 30 年間でほぼ一定の CO₂ age を再現するためには、中部および上部成層圏の Brewer-Dobson 循環が弱まる一方で下部成層圏の循環が強まる必要があることを示唆しており、TLP モデルのような輸送メカニズムを考えることで Kawatani and Hamilton (2013)

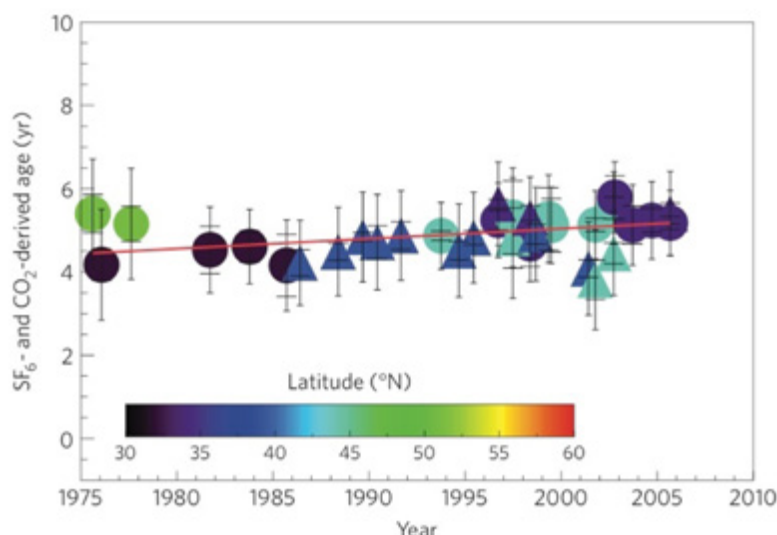


図2 高度 24 km 以上の中部成層圏において観測された成層圏空気平均年齢 (mean age) の経年変化 (Engel et al. (2002) の Figure 3 より引用)。丸印は SF_6 濃度の、三角印は CO_2 濃度の観測結果に基づいて推定された mean age をそれぞれ示す。

と Engel et al. (2009) の結果を矛盾なく説明できる可能性がある。また Bönisch et al. (2011) は成層圏 O_3 と N_2O 濃度の観測結果に基づき、熱帯域下部成層圏における水蒸気量の減少から示唆されている 2000 年以降の熱帯域における上昇流の強化が、温位 500 K 以下の下部成層圏における熱帯域から温帯域への輸送の強化に由来することを示唆している。Bönisch et al. (2011) では、1979–2009 年の期間において Brewer-Dobson 循環が下部成層圏において強化され中部成層圏では変化していないことを併せて示唆し、Brewer-Dobson 循環の全体像の経年変動を議論するためには、熱帯域対流圏界面を介した上昇流の変動を追跡するだけでは指標として不十分であることを強調して述べている。

以上の背景を踏まえて本研究では、統一的な見解が得られていない中層大気循環の経年変動と気候変動の関係の解明に新たな視点から貢献することを目指として、成層圏における大気主成分の重力分離の観測に取り組んだ。

3. 成層圏大気試料の採取と分析

クライオジェニックサンプラー (Honda et al., 1990; 1996) を用いた成層圏大気の採取は 1985 年に開始され、現在まで日本三陸 (39° N, 142° E) および大樹町 (43° N, 143° E) 上空、南極昭和基地 (69° S, 40° E) 上空およびスウェーデンのキルナ (68° N, 21° E) 上空において観測が行われてきた (e.g. Nakazawa et al., 1995; Sugawara et al., 1997; Aoki et al., 2003; Toyoda et al., 2004)。サンプラーは大気球によって打ち上げられ、地上からの電波信号により試料採取バルブを所定の高度で開閉することで、液体ヘリウムにより極低温に冷却された試料容器中に大気を固化して採取し、圏界面直上から高度約 35 km までの 11 高度においてそれぞれ約 25 L (0°C, 1013.25 hPa) の大気の採取に成功した。本研究では、三陸上空において 1999 年 5 月 31 日、2000 年 8 月 28 日、2001 年 5 月 30 日、2002 年 9 月 4 日、2004 年 9 月 6 日、2006 年 6 月 3 日および 2007 年 6 月 4 日に、大樹町上空において 2010 年 8 月 22 日に、昭和基地上空において 2004 年 1 月 5 日に採取した試料について、その N_2 および O_2 の安定同位体比 ($\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$) と O_2/N_2 比 ($\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$) を分析した。また三陸上空で 1995 年 6 月 8 日に、昭和基地上空で 1998 年 1 月 3 日に、キルナ上空で 1997 年 3 月 18 日に採取した試料の $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ を分析した。試料の分析は、安定同位体質量分析計 (Finnigan MAT-252) を用いて行われた (Ishidoya et al., 2003)。さらに三陸上空において 2007 年 6 月 4 日に採取した試料については、質量分析計 (Thermo Scientific DELTA-V) を用いて新たに開発した $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 Ar/N_2 比 ($\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$)、 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ および Ar 安定同位体比 ($\delta^{40}\text{Ar}$) の高精度分析装置 (Ishidoya and Murayama, 2014) による分析も併せて行なった。MAT-252 を用いた成層圏大気試料の $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ の測定精度は ± 30 – 40 、 ± 12 および ± 26 per meg であり、DELTA-V を用いた $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ および $\delta^{40}\text{Ar}$ の測定精度は ± 5 、 ± 7 、 ± 35 および ± 22 per meg であった。なお、本研究で用いる $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ および $\delta^{40}\text{Ar}$ の表記式は以下の通りである。

$$\delta^{16}\text{O}^{16}\text{O}/^{15}\text{N}^{14}\text{N} = \left(\frac{(^{16}\text{O}^{16}\text{O}/^{15}\text{N}^{14}\text{N})_{\text{sample}}}{(^{16}\text{O}^{16}\text{O}/^{15}\text{N}^{14}\text{N})_{\text{standard}}} - 1 \right) \times 10^6 \text{ (per meg)}, \quad (1)$$

$$\delta^{40}\text{Ar}/^{14}\text{N}^{14}\text{N} = \left(\frac{(^{40}\text{Ar}/^{14}\text{N}^{14}\text{N})_{\text{sample}}}{(^{40}\text{Ar}/^{14}\text{N}^{14}\text{N})_{\text{standard}}} - 1 \right) \times 10^6 \text{ (per meg)}, \quad (2)$$

$$\delta^{15}\text{N} = \left(\frac{(^{15}\text{N}^{14}\text{N}/^{14}\text{N}^{14}\text{N})_{\text{sample}}}{(^{15}\text{N}^{14}\text{N}/^{14}\text{N}^{14}\text{N})_{\text{standard}}} - 1 \right) \times 10^6 \text{ (per meg)}, \quad (3)$$

$$\delta^{18}\text{O} = \left(\frac{(^{18}\text{O}^{16}\text{O}/^{16}\text{O}^{16}\text{O})_{\text{sample}}}{(^{18}\text{O}^{16}\text{O}/^{16}\text{O}^{16}\text{O})_{\text{standard}}} - 1 \right) \times 10^6 \text{ (per meg)}, \quad (4)$$

$$\delta^{40}\text{Ar} = \left(\frac{(^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_{\text{sample}}}{(^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_{\text{standard}}} - 1 \right) \times 10^6 \text{ (per meg)}, \quad (5)$$

ここで、sample は測定試料を、standard は標準試料を表す。O₂ および Ar は大気中の濃度がそれぞれ約 20.946 および 0.934 % であることから、約 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ の 4.8 per meg、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ の約 107 per meg の変動が、それぞれ O₂ および Ar 濃度の約 1 ppm の変動に対応する。なお式 (1) と式 (2) において異なる質量数の N₂ が使用されているが、このことは、本研究の $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 値として MAT-252 測定値が、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ 値として DELTA-V 測定値が用いられていることによる。MAT-252 では質量分析計の構造による制限のため $^{14}\text{N}^{14}\text{N}$ ではなく $^{16}\text{O}^{16}\text{O}$ と質量数がより近い $^{15}\text{N}^{14}\text{N}$ を用いて O₂/N₂ 比を測定しており、一方で DELTA-V では O₂/N₂ および Ar/N₂ の比として $^{16}\text{O}^{16}\text{O}/^{14}\text{N}^{14}\text{N}$ および $^{40}\text{Ar}/^{14}\text{N}^{14}\text{N}$ を測定している。

4. 結果と考察

4.1. 三陸および昭和基地上空で観測された $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ の高度分布

図 3 に三陸および昭和基地上空で観測された $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ の高度分布を示す (Ishidoya et al., 2006)。 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ 値は高度の上昇に伴って減少し、 $\delta^{15}\text{N}$ と $\delta^{18}\text{O}$ の減少量はそれぞれの測定対象分子の質量数の差 Δm ($^{15}\text{N}^{14}\text{N} - ^{14}\text{N}^{14}\text{N} = 1$ 、 $^{18}\text{O}^{16}\text{O} - ^{16}\text{O}^{16}\text{O} = 2$) にほぼ比例していた。N₂ と O₂ の大気寿命はそれぞれ約 10⁷ 年および 1200 年であることから (e.g. Bender et al., 1994)、本研究で扱う 10 年スケールの時間では対流圏大気中の $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ はほぼ一定の値である。従って、図 3 のような高度増加に伴う観測値の減少は、成層圏大気試料中の分子が質量数に応じた何らかの成分分別効果を受けていることを示している。

観測された高度分布の成因を調べるため、分子拡散と渦拡散を考慮した定常 1 次元モデル (Lettau, 1951) を用いて $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ の高度分布を計算した結果を図 4(a) に示す (Ishidoya et al., 2006)。なお計算には Lettau (1951) による分子拡散係数と、Massie and Hunten (1981) により報告された渦拡散係数とを用いた。分子拡散係数が現実大気にお

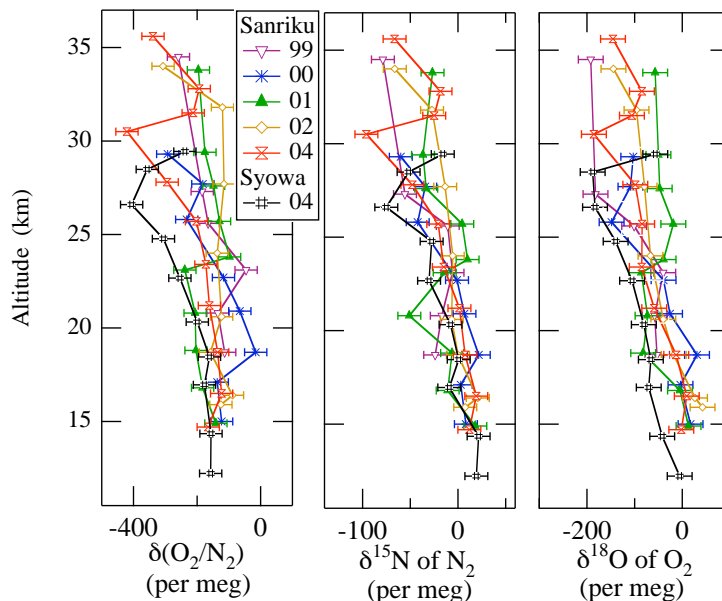


図 3 日本三陸および南極昭和基地上空において観測された $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ の高度分布 (Ishidoya et al. (2006) の Figure 1 より引用)。

いて高度と共に増加することを考慮した場合の $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ 計算値は高度上昇に伴って減少し、その変動量は図 3 の観測結果と整合的であった。一方、分子拡散係数が高度によらず地表における値のままで一定であると仮定した場合の $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ 計算値は、いずれも高度によらずほぼ一定の値を示した。また図 4(b) には、図 3 の $\delta^{15}\text{N}$ 観測値と $\delta^{18}\text{O}$ 観測値との関係を示した。大気成分が重力分離によって変動する場合には、その変動量は大気分子の質量数に比例すると考えられるが、図 4(b) において Geometric mean regression (Miller and Tans, 2003) による回帰直線の傾きから求めた $\delta^{18}\text{O}/\delta^{15}\text{N}$ 比は $1.95 \pm 0.18 \text{ per meg per meg}^{-1}$ であり、 $\delta^{18}\text{O}$ と $\delta^{15}\text{N}$ の Δm 比 ($2/1=2$) と一致していた。これらの結果から、高度上昇に伴って渦拡散に対する分子拡散の寄与が増大することによる大気成分の重力分離が、観測された成層圏における $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ 値の減少の原因であることが示唆される。

図 5 には、図 3 における $\delta^{15}\text{N}$ ($\Delta m=1$) の変動が全て重力分離に起因すると仮定して、 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ の Δm が 3 であることを考慮し、 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ から $3 \times \delta^{15}\text{N}$ を差し引くことで重力分離の影響を取り除いた $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ の高度分布を示す (Ishidoya et al., 2006)。重力分離の影響がない場合の $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ は、ばらつきは大きいものの、下部成層圏において高度上昇と共に値が増加し、中部成層圏ではほぼ一定の値を示した。このような高度分布は、図 5 に併せて示した CO_2 濃度の高度分布が下部成層圏で高度上昇に伴う値の減少を示し、中部成層圏でほぼ一定の値をとることと対称的である。成層圏で

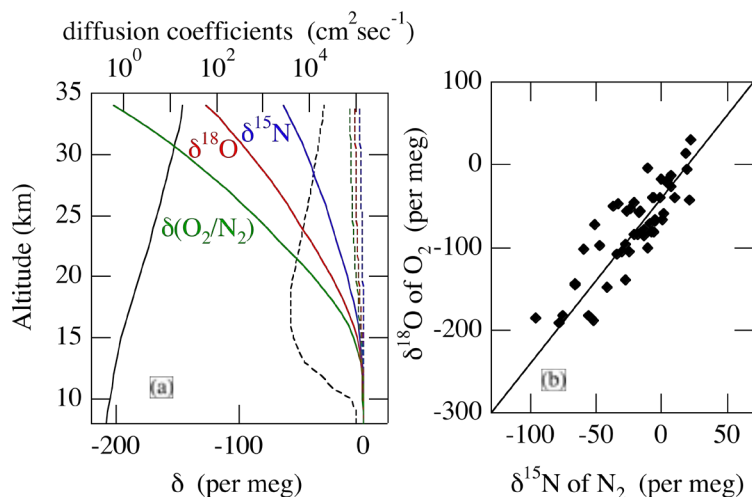


図 4 (a) 分子拡散と渦拡散を考慮した定常 1 次元モデルにより計算した $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ の高度分布。緑、青および赤の実線は、それぞれ分子拡散係数の高度依存性を考慮した場合の $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ の計算結果であり、同じく破線は分子拡散係数を高度によらず一定とした場合の結果である。黒の実線と破線は、高度依存性を考慮した場合の分子拡散係数と、渦拡散係数とをそれぞれ示す。(b) 図 1 に示された日本三陸および南極昭和基地上空における $\delta^{15}\text{N}$ と $\delta^{18}\text{O}$ の関係。実線は変動が重力分離に起因する場合の関係を示す (図は (a)、(b) とも Ishidoya et al. (2006) の Figure 2 より引用)。

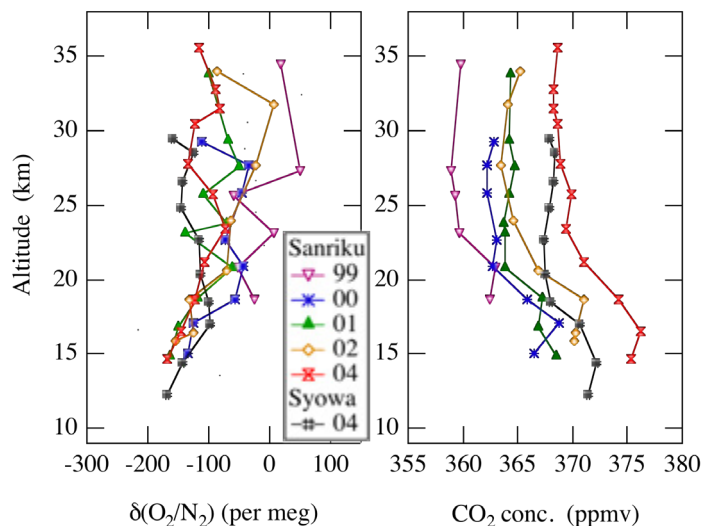


図 5 $\delta^{15}\text{N}$ の高度分布に基づいて評価した重力分離の影響を差し引いた、日本三陸および南極昭和基地上空における $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ の高度分布 (Ishidoya et al. (2006) の Figure 3 より引用)。 CO_2 濃度の高度分布も併せて示す。

は CH_4 の酸化によるわずかな CO_2 生成以外に、 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ および CO_2 濃度に大きな影響を与える O_2 と CO_2 の生成・消滅源が存在しないことから、図 3 の $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ と CO_2 濃度の対称的な高度分布は、対流圏大気中で経年的に $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ および CO_2 濃度がそれぞれ減少および増加しており (e.g. Manning and Keeling, 2008; Bender et al., 2005; Tohjima et al., 2008; Ishidoya et al., 2012a,b)、その変動が時間の遅れを伴って成層圏に伝搬していることに起因すると考えられる。

以上の結果から、成層圏大気主成分の重力分離を世界に先駆けて検出した可能性が示唆された。しかしながら、成層圏では O_3 の光化学反応を介した O_2 と CO_2 の酸素同位体交換によって CO_2 の $\delta^{18}\text{O}$ が高度上昇とともに急増することが知られており (Gamo et al., 1989)、その効果により O_2 の $\delta^{18}\text{O}$ は高度上昇に伴って減少する可能性がある。さらに、クライオジェニックサンプラーの空気取入口が高度の上昇に伴い日射で加熱されることで生じ得ると考えられる、系内の温度の高い領域において質量数の小さい分子の存在比が高くなる熱拡散現象 (e.g. Blaine et al., 2006) によっても、高度の上昇に伴う $\delta^{15}\text{N}$ と $\delta^{18}\text{O}$ の減少が生じ得る。熱拡散における $\delta^{18}\text{O}/\delta^{15}\text{N}$ 比は $1.55 \text{ per meg per meg}^{-1}$ と重力分離から予想される 2 より小さい値になるが (Grew and Ibbs, 1952)、上記の酸素同位体交換の効果と熱拡散の効果が同時に働いた場合には、 $\delta^{18}\text{O}/\delta^{15}\text{N}$ 比が重力分離と同様の 2 の値を示す可能性がある。従って、Ishidoya et al. (2006) および (2008a) で報告した $\delta^{15}\text{N}$ と $\delta^{18}\text{O}$ の観測だけからは成層圏における重力分離の存在を断定することはできず、 N_2 と同様に化学反応の影響を受けない Ar の濃度・同位体比の高精度分析を実現することで重力分離を再評価することが課題として残された。

4.2. 三陸上空で観測された $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ および $\delta^{40}\text{Ar}$ の高度分布

4.1 節の末尾で述べた課題を受けて、我々のグループでは質量分析計を用いた $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ 、 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ および $\delta^{40}\text{Ar}$ の高精度分析装置を開発し (Ishidoya and Murayama, 2014)、2007 年 7 月 4 日に採取した三陸上空成層圏大気試料の分析に応用した。図 6 に、得られた $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ および $\delta^{40}\text{Ar}$ の高度分布を示す (Ishidoya et al., 2013)。なお $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ および $\delta^{40}\text{Ar}$ の値は、 $\Delta m=1$ に規格化するためにそれぞれ 2、12 および 4 で割った値をプロットしている。図には、図 4(a) で用いたものと同様の定常 1 次元分子拡散・渦拡散モデルによる $\delta^{15}\text{N}$ 計算値の高度分布も併せて示した。 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}/2$ 、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)/12$ および $\delta^{40}\text{Ar}/4$ 値は、いずれも高度上昇に伴う値の減少を示した。その高度に伴う減少量は 32km 高度で約 45 per meg であり、図 3 の観測結果と同様に 1 次元モデルによる結果と整合的であった。また $\delta^{15}\text{N}$ と $\delta^{18}\text{O}$ の分析は 2 台の質量分析計の両方で行なわれたが、その変動は測定精度内で一致しており、機差に依存しない観測結果が得られていることを示している。

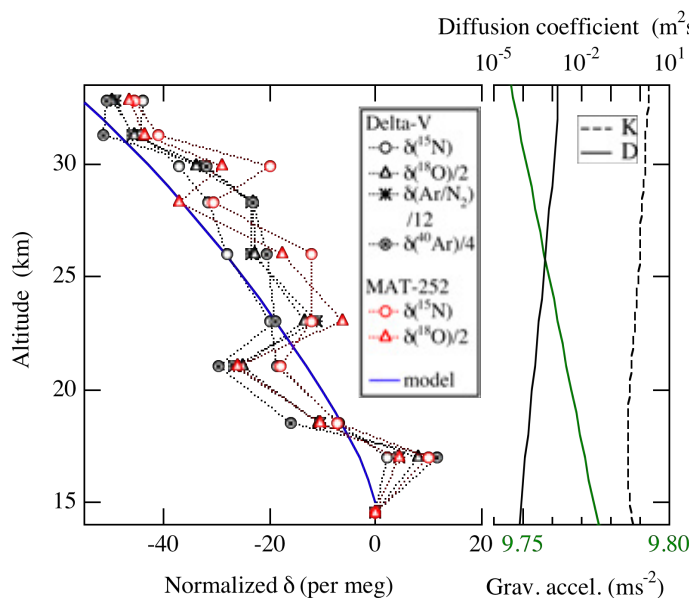


図 6 日本三陸上空において 2007 年 7 月 4 日に採取された大気試料の、 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}/2$ 、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)/12$ および $\delta^{40}\text{Ar}/4$ の高度分布 (Ishidoya et al. (2013) の Figure 1 より引用)。黒および赤のシンボルはそれぞれ質量分析計 DELTA-V および MAT-252 による測定値を示す。図には図 2(a) と同様の定常 1 次元分子拡散・渦拡散モデルから計算した $\delta^{15}\text{N}$ の高度分布 (青実線) と、モデルに用いた分子拡散および渦拡散係数 (黒実線および破線) と重力加速度 (緑実線) を併せて示した。

図6の観測結果に対するサンプラーの空気取入口における熱拡散分別による影響を評価するため、観測された $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ および $\delta^{40}\text{Ar}$ と $\delta^{15}\text{N}$ の関係と、室内実験によって得られた、熱拡散分別に起因した変動による場合のそれらの成分の関係とを比較した(図7)。室内実験では、直列に接続し大気圧 +0.07 MPa の圧力で乾燥空気を充填した2個の容積 2700 mL のパイレックスガラスフラスコ的一方を、上述の高精度観測装置に接続して、充填した空気を約 4 mL min^{-1} の流量で装置のインレット中に通気し、そのごく一部分を、フューズドシリカキャピラリーを通じて質量分析計のイオンソースに導入することで連続的に $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ および $\delta^{40}\text{Ar}$ を分析した。その分析の間に、もう一方のフラスコを室温 (25°C) から -57°C まで徐々に冷却し、装置のインレットに接続した側のフラスコの温度は室温に保った。この実験により、系内に温度勾配が生じることに伴う熱拡散分別のみに起因した $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ および $\delta^{40}\text{Ar}$ の変動を調べることが可能である。室内実験の結果に対する回帰直線の傾きから求められた、熱拡散に起因した変動における $\delta^{18}\text{O}/\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)/\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{40}\text{Ar}/\delta^{15}\text{N}$ 比は、それぞれ 1.55 ± 0.02 、 16.2 ± 0.1 および $2.75 \pm 0.05 \text{ per meg per meg}^{-1}$ であった。一方、観測値における $\delta^{18}\text{O}/\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)/\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{40}\text{Ar}/\delta^{15}\text{N}$ 比はそれぞれ 2.1 ± 0.2 、 11.9 ± 1.4 および $4.2 \pm 0.6 \text{ per meg per meg}^{-1}$ であって、変動が重力分離による場合の比(それぞれ2、12および4)とよく一致し、熱拡散による場合とは明らかに異なる比を示した。また、室内実験で得られた熱拡散による場合の $\delta^{18}\text{O}/\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{40}\text{Ar}/\delta^{15}\text{N}$ 比は、Grew and Ibbs (1952) および Severinghaus et al. (2001) によって報告されている各成分の熱拡散係数の比に基づいた約1.6および2.6の値とも整合的であった。これらの結果から、本観測により成層圏大気における大気主成分の重力分離が初めて捉えられたことが確実となった。

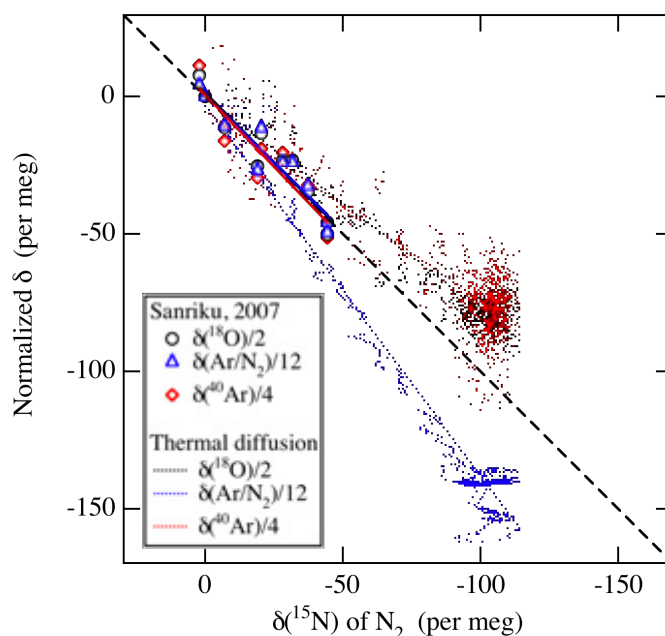


図7 2007年7月4日に採取された大気試料の $\delta^{18}\text{O}/2$ 、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)/12$ および $\delta^{40}\text{Ar}/4$ 観測値と $\delta^{15}\text{N}$ 観測値との関係(Ishidoya et al. (2013) の Figure 2 より引用)。なお値は図6中の DELTA-V による測定値である。図には室内実験に基づく熱拡散に起因する場合の $\delta^{18}\text{O}/2$ 、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)/12$ および $\delta^{40}\text{Ar}/4$ と $\delta^{15}\text{N}$ の関係も併せて示す(黒、青および赤点線、本文参照)。黒破線は変動が重力分離に起因する場合の関係を示す。

4.3. $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ および CO_2 濃度に対する重力分離の影響評価

観測された重力分離の量を表す指標として、 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}/2$ 、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)/12$ および $\delta^{40}\text{Ar}/4$ の平均値を「 δ 値」として定義する。 δ 値を用いることにより、以下の式によって大気成分の濃度および同位体に重畳している重力分離の量 (ΔX_{grav} および $\Delta \delta_{\text{grav}}$) を評価することができる。

$$\Delta X_{\text{grav}} \approx X \times (m - m_{\text{air}}) \times \Delta \delta \quad (6)$$

$$\Delta \delta_{\text{grav}} = \Delta m \times \Delta \delta \quad (7)$$

ここで X は対象とする大気成分の大気中における mol 分率であり、 m は同成分の分子量、 m_{air} は空気平均分子量を示し、

$\Delta\delta$ は成層圏において観測された δ 値と対流圏における値（一定値）との差である。

図 8 に、式 (7) および (6) を用いることで重力分離の効果を補正した $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ および CO_2 濃度の、中部成層圏における平均値の経年変動を示す (Ishidoya et al., 2013)。図には重力分離補正を行なわない場合のデータも併せて示した。重力分離補正を行なった $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ は補正を行なわない場合に比して値が 100 per meg 以上高くなっており、中部成層圏における値のばらつきも大幅に小さくなっていた。この補正量は、化石燃料消費に伴う対流圏大気中 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ の 1 年間の経年減少量である約 20 per meg と比較して数倍大きい (e.g. Ishidoya et al., 2012a)。一方で CO_2 濃度に対する重力分離補正量は 0.14-0.36 ppm であり、 CO_2 濃度の 1 年間の経年増加量である約 2 ppm (e.g. Keeling et al., 2009) より一桁小さい。このことは、 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ の 20 per meg の変動は O_2 の存在量に対する約 0.002% の変動であり、一方 CO_2 濃度の 2 ppm の変動は CO_2 存在量に対する約 0.5 % の変動であって、存在量に対して大気中での変動が極めて小さい成分の成層圏大気中における変動を考える場合には、重力分離の影響が無視できなくなることを示している。また重力分離補正を行なった中部成層圏における $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ は、図 8 に併せて示した日本上空上部対流圏における $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ (Ishidoya et al., 2012a) より高い値を示すとともに、対流圏と同様の経年減少を示していた。重力分離補正を行なった中部成層圏と上部対流圏の $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ の差と、対流圏大気中の経年減少率から、日本上空中部成層圏には日本上空上部対流圏より 3.9 ± 0.9 年だけ古い空気が存在していることが示唆される。この値は、同様の手法で CO_2 濃度を用いて計算した場合の 4.0 ± 0.4 年と整合的であり、本研究による δ 値を指標とした重力分離の評価法が妥当であることを裏付けている。

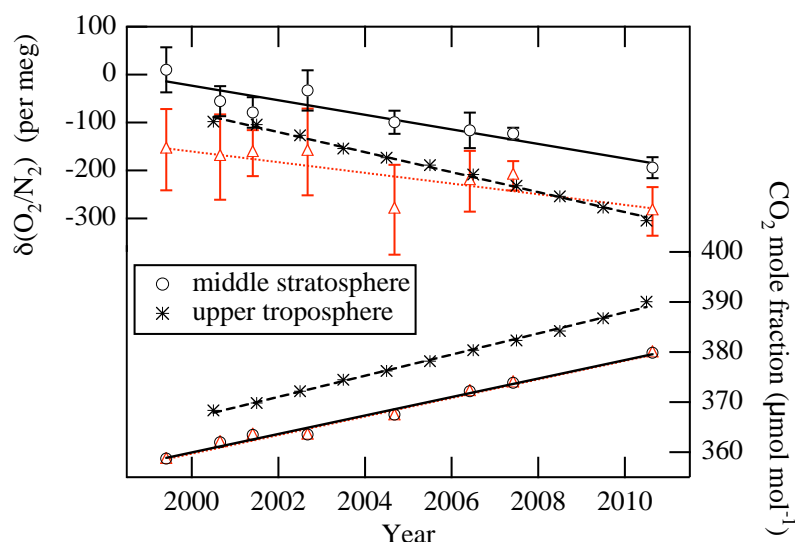


図 8 1999-2010 年の期間に日本三陸上空において観測された、18-25 km 以上の高度における $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ および CO_2 濃度平均値の、重力分離効果の補正後（白抜き丸）および補正前（赤三角）の値 (Ishidoya et al. (2013) の Figure 3 より引用)。アスタリスクは 2000-2010 年の期間に観測された日本上空上部対流圏の $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ および CO_2 濃度の年平均値を示す。

4.4. 重力分離の観測に基づいた中層大気循環の長期変動の評価手法の提唱

本節では観測された重力分離の中層大気循環研究への応用として、中層大気子午面循環（Brewer-Dobson 循環：BDC）(Brewer, 1949) の長期変動を、 δ 値と成層圏空気塊の平均年齢（mean age）(e.g. Waugh and Hall, 2002) を組み合わせた解析によって評価する手法を提唱する。なお本研究では mean age として、 CO_2 濃度の観測値から推定した CO_2 age を用いる。 CO_2 age は、赤道域対流圏において長期的に観測されている CO_2 濃度 (Nakazawa et al., 1997) の経年変化を参照することで、観測された成層圏大気中の CO_2 濃度（但し、 CH_4 の酸化による CO_2 生成の寄与を補正した値）と等しい CO_2 濃度が赤道域対流圏において観測された時期を求め、その観測時期と成層圏大気採取が実施された時との時間差を計算することで導出された。

本稿 2 章の「背景」において述べたように、地球温暖化に伴って Brewer-Dobson 循環が強化されることが多くの気候モデルから予測されており、そのような経年的な循環の強化が生じた場合には成層圏の mean age は経年的に減少すると考えられている (e.g. Austin and Li, 2006; Li et al., 2008)。しかしながら Engel et al. (2009) によって報告された、我々の観測データの一部を含む過去 30 年間の大気球観測に基づく CO_2 age からは、有意な経年変動は検出されなかった。この

ため、温暖化に対する Brewer-Dobson 循環の応答に関して観測とモデル予測との間で大きな矛盾を生じており、新たな手法に基づくブレイクスルーが望まれている状況にある。重力分離がこの問題の解決に有用な指標となり得るかを調べるため、中間圏高度以上における分子拡散の寄与が予め考慮されている 2 次元大気化学輸送モデル (SOCRATES) (Huang et al., 1998; Park et al., 1999; Khosravi et al., 2002) を用い、分子拡散を考慮する下限高度を対流圏界面高度に変更することで、 δ 値のシミュレーションを行なった。SOCRATES モデルは、高度的には地表から 120 km まで 1 km の解像度を、緯度的には 85° S から 85° N まで 5° の解像度を有し、その力学場と温度場の支配方程式は、変形オイラー平均方程式により表現される、帯状平均の熱力学・運動量・質量保存 (連続) に関する準地衡方程式系である (Huang et al., 1998)。なお SOCRATES を含む多くの中層大気モデルでは、モデル中の大気輸送が現実大気より速く、 CO_2 age の計算値が観測値に対して過小評価となることが報告されている (Park et al., 1999)。そのため、本研究では対流圏大気中での CO_2 濃度増加をモデル中で考慮することによって CO_2 age のシミュレーションも行い、北半球中緯度における CO_2 age の計算値が日本上空成層圏で観測した CO_2 age と一致するようにモデル中の質量流線関数を調整した。SOCRATES における物質の輸送場は、変形オイラー平均方程式系の残差循環として流線関数から計算される。流線関数は放射場と力学場の変化に伴って変化する診断方程式で与えられるが、本研究では初期の流線関数にあるファクターだけ一律に減じることで調整を行なった。 CO_2 age が現実大気のそれに合うように調整した状態におけるシミュレーションを、以下では「Control Run」と表記する。なお SOCRATES では大気主成分濃度の計算が不可能であるため、質量数 45 の $^{13}\text{C}^{16}\text{O}^{16}\text{O}$ 濃度および 44 の $^{12}\text{C}^{16}\text{O}^{16}\text{O}$ 濃度を対流圏大気中の経年変動を与えずに計算し、その比 ($\Delta m = 1$) から δ 値を計算した。

図 9(a) および (b) は SOCRATES モデルの Control Run シミュレーションで得られた δ 値および CO_2 age の年平均緯度-高度分布である (Ishidoya et al., 2013)。Control Run による δ 値は同一高度の成層圏大気中において、低緯度でその絶対値が小さく、高緯度で大きくなっていた。また、北半球中緯度における δ 値の計算値は、日本上空における δ 値の観測値とよく一致していた。一方で CO_2 age は低緯度で値が小さく、高緯度で大きくなっていた。このことから、一般に CO_2 age が大きい空気塊ほど重力分離が進行していることが示唆され、また CO_2 age の変動に対応した重力分離の変動量は、観測によって検出可能な量であることが示唆される。実際に、図 10 に示した、1995-2010 年の期間における δ 値および CO_2 age の日本上空中部成層圏における平均値には、 CO_2 age が大きいほど δ 値の絶対値がより大きくなる (重力分離が進行している) 明瞭な負相関の関係が見られた。なお図 10 における δ 値は、観測期間を通じた平均高度分布からの偏差として示している。

また図 11 に示した、Ishidoya et al. (2008a) による日本上空、極渦内の北極キルナ上空、および極渦崩壊後の南極昭和基地上空における δ 値と CO_2 age の観測結果においても、SOCRATES モデル Control Run による予測と整合的な、高緯

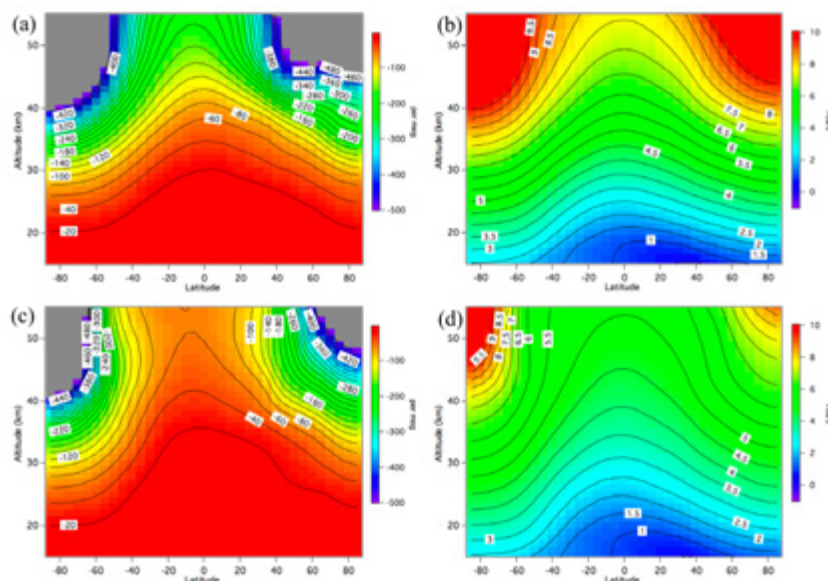


図 9 2 次元大気化学輸送モデル (SOCRATES) を用いて計算された δ 値 (per meg) および CO_2 age (years) の年平均緯度-高度分布。(a) と (b) は Control Run シミュレーションによって得られた δ 値と CO_2 age の分布を、(c) と (d) は Enhanced BDC シミュレーションによって得られた δ 値と CO_2 age の分布をそれぞれ示す (本文参照)。なお -500 per meg 以下の δ 値を灰色で示す (図はいずれも Ishidoya et al. (2013) の Figure 4 より引用)。

度において重力分離がより強く CO_2 age が大きくなる高度分布が得られている。さらに 2013 年 2 月に我々のグループが行なったペルー沖赤道域上空成層圏における観測から、SOCRATES モデルで予測されているように赤道域では日本上空に比して重力分離が弱く、 CO_2 age が小さくなることが示されている（未公表データ）。以上から、重力分離の時空間変動を、本研究の観測によって明確に捉え得ることが強く示唆される。

そこで、多くの気候モデルにより予測されている温暖化に伴った Brewer-Dobson 循環の強化が生じた場合に、 δ 値がどのように応答するかを調べる目的で、SOCRATES モデルの質量流線関数を調整することにより子午面輸送を強化したシミュレーションを行なった。質量流線関数の調整は、北半球中緯度 30 km 高度における CO_2 age の計算値が Control Run による計算値の 80 % になるように行なった。この CO_2 age の減少量は、1960–2100 年の期間における温暖化によって生じると予測されている量に相当する (Austin and Li, 2006)。このように Brewer-Dobson 循環の強化を模して子午面輸送を強化したシミュレーションを、以下では「Enhanced BDC」と表記する。図 9 (c) に示した Enhanced BDC シミュレーションによる δ 値は、Control Run による値と比較して成層圏全層においてその絶対値が小さくなっており、Brewer-Dobson 循環の強化により CO_2 age が減少した場合には重力分離の弱化が生じることが分かる。

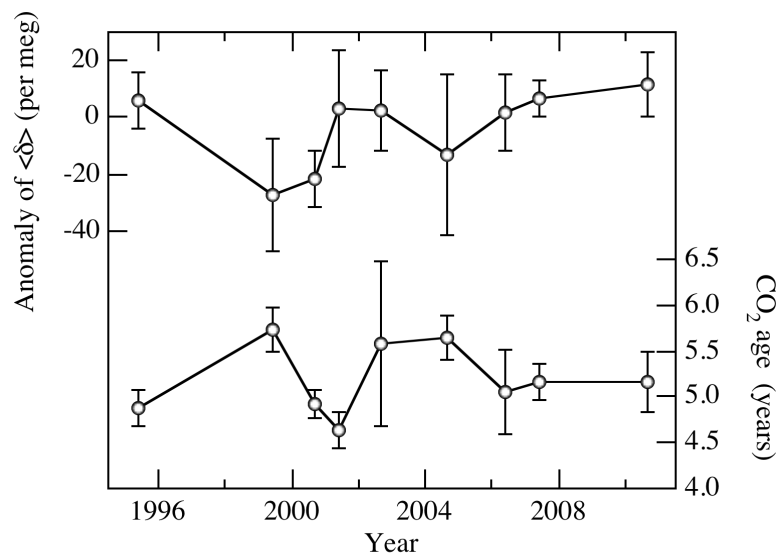


図 10 日本上空の各年の観測における 20–28 km 以上の高度での δ 値の平均値の、観測期間を通じた δ 値の平均高度分布からの偏差。図には同高度帯における CO_2 age の平均値も併せて示す (Ishidoya et al. (2013) の Figure 5 より引用)。

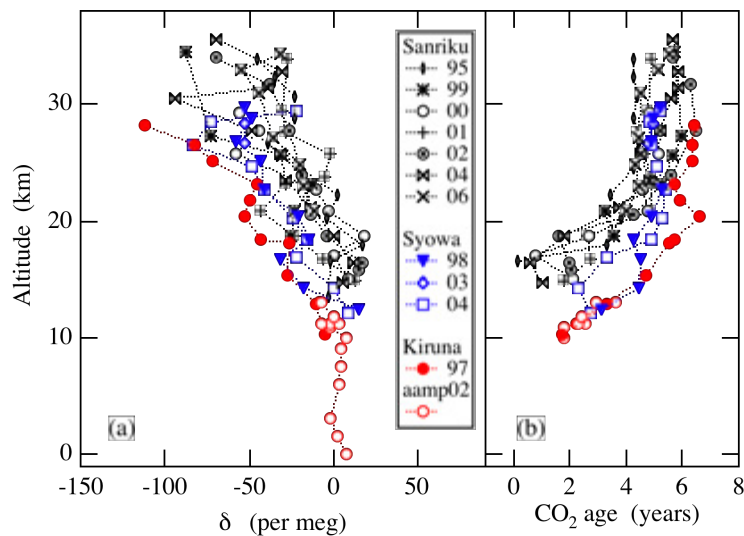


図 11 (a) 日本三陸上空、南極昭和基地上空およびスウェーデンキルナ上空で観測された、重力分離の指標である δ 値（本文参照）の高度分布。北極域航空機観測（Arctic Airborne Measurement Program 2002; AAMP02）において得られた結果 (Ishidoya et al., 2008b) も併せて示す。(b) (a) と同様、ただし CO_2 濃度の観測値から推定した成層圏大気の平均年齢 (CO_2 age) の結果である（図は (a)、(b) とも Ishidoya et al. (2008a) の Figure 1 より引用）。

図 12(a) に、Control Run と Enhanced BDC の両シミュレーションにおける、北半球中緯度の δ 値と CO_2 age との関係を示した。図には、日本上空の各年の観測から得られた、高度 29 km 相当の δ 値と中部成層圏 CO_2 age の平均値との関係も併せて示した (Ishidoya et al., 2013)。図から、Control Run と Enhanced BDC では、 CO_2 age が 4 年以上の場合に δ 値と CO_2 age との関係が大きく異なり、等 CO_2 age 面における重力分離が Enhanced BDC においてより強まること分かる。このような関係の違いを生じる原因を明らかにするため、図 12(b) に Control Run および Enhanced BDC シミュレーションによる δ 値と CO_2 age の高度分布を示す。図 12(b) から、Enhanced BDC においては、Control Run と等しい CO_2 age が現れる高度がより高くなること分かる。その場合、より高い高度では分子拡散係数の高度依存性 (図 4(a) および図 6 参照) のため、重力分離効果が強く働くことになる。従って、Enhanced BDC においては、同一高度での δ 値の絶対値は Control Run より小さくなり重力分離が弱まるが、 CO_2 age との関係として見た場合には、図 12(a) のような等 CO_2 age

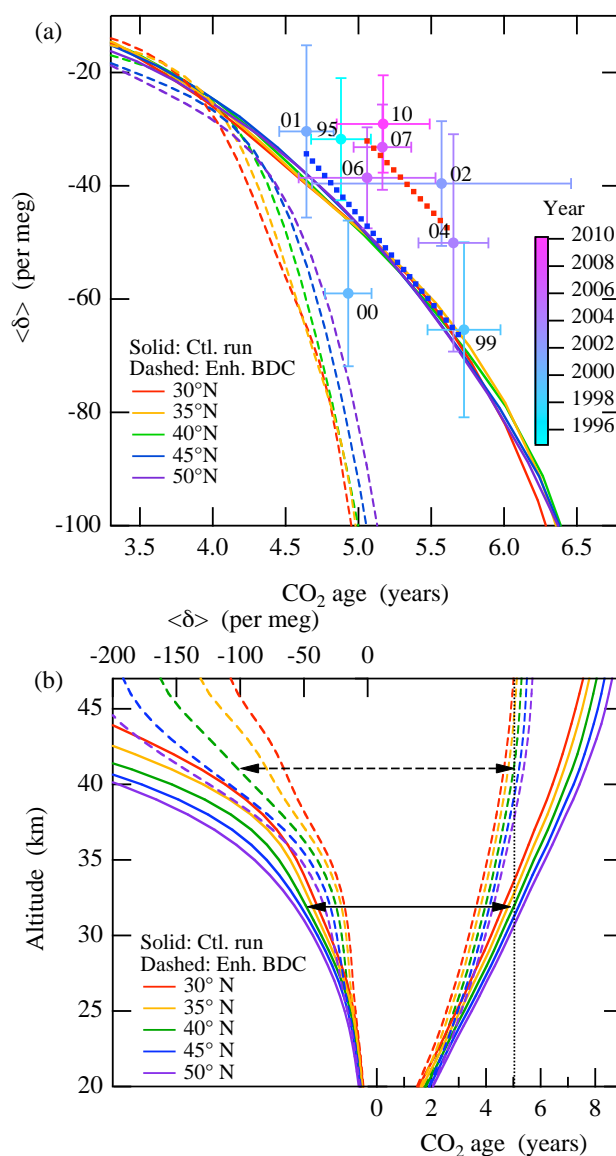


図 12 (a) 1995–2010 年の期間に観測された、日本上空の各年の観測における高度 29 km 相当の δ 値と 20–28 km 以上の高度における CO_2 age との関係。カラーバーおよび丸印の横に附された数字は観測年を示す。SOCRATES モデルによる、Control Run および Enhanced BDC シミュレーションによって得られた 30–50° N における δ 値と CO_2 age の年平均値の関係を、それぞれ実線および破線で示す。青および赤の点線はそれぞれ、1995–2001 年および 2004–2010 年の期間の観測値に対する回帰直線である。(b) SOCRATES モデルによる Control Run (実線) および Enhanced BDC シミュレーション (破線) によって得られた、30–50° N における δ 値と CO_2 age の年平均値の高度分布。矢印付き黒の実線および破線は、Control Run および Enhanced BDC シミュレーションにおいて、40° N での CO_2 age が 5 年となる時に対応した δ 値を示す (図は (a)、(b) とも Ishidoya et al. (2013) の Figure 6 より引用)。

面における重力分離の強化が生じることになる。このことは、 δ 値と CO_2 age の関係の経年変動の観測により、Brewer-Dobson 循環の長期変動が捉えられることを示している。また図 10 に示したように δ 値と CO_2 age の年々変動は明瞭な負相関の関係にあることから、 CO_2 age のみに基づいた経年変動解析の場合に深刻な問題となる年々変動の寄与が、 δ 値と CO_2 age の関係として見た場合には相殺されて大幅に軽減されると期待される。従って、成層圏重力分離の観測は、中層大気循環の研究の上で有効なツールになり得ることが明らかになった。

一方、図 12(a) に示した観測値による δ 値と CO_2 age の関係から、結果のばらつきは大きいものの、等 CO_2 age 面における δ 値の絶対値が経年的にやや小さくなっていることが見て取れる。この変動は、大気輸送状態が Control Run から Enhanced BDC に移行する場合に予測される変動とは明らかに逆方向である。また Engel et al. (2009) にまとめられた CO_2 age のうち、我々のグループによるデータのみを用いて、さらにその観測期間を最新の 2010 年までに延ばした場合には、1985–2010 年の期間における日本上空の CO_2 age は有意な増加トレンドを示した。さらに、衛星観測による SF_6 濃度観測に基づいた SF_6 age からも (Stiller et al., 2012)、2002–2010 年の期間に北半球中緯度中部成層圏の SF_6 age が増加している可能性が示唆されている。これらの観測結果から、多くの気候モデルの予測とは逆に、温暖化の進行にも関わらず中部成層圏の Brewer-Dobson 循環は変化していないかむしろやや弱まっている傾向にあることが示唆される。Ray et al. (2010) では Tropical leaky pipe (TLP) モデルを用いることで、Engel et al. (2009) で報告されたような過去 30 年間でほぼ一定の CO_2 age を再現するためには、中部および上部成層圏の Brewer-Dobson 循環が弱まる必要があることを示している。彼等の結果は、上記の δ 値と CO_2 age の観測値に基づく結果と整合的である。しかしながら TLP モデルは CO_2 age の経年変化が成層圏における水平方向の大気混合過程に強く依存することも示唆しており、今後、そのような水平混合が CO_2 age のみならず重力分離にどのように影響するかに関して、TLP モデル等を用いた検証が必要である。

5. 結論

成層圏における大気主成分の重力分離を検出するため、大気球に搭載したクライオジェニックサンプラーを用いて成層圏大気を採取し、その $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ 、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ および $\delta^{40}\text{Ar}$ を高精度で分析した。観測された $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ および $\delta^{40}\text{Ar}$ は高度上昇に伴って値が減少し、その減少量は分子拡散を考慮した 1 次元モデルから予測される量と整合的であった。また、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ および $\delta^{40}\text{Ar}$ と $\delta^{15}\text{N}$ との関係はそれぞれ重力分離から予測される完全な質量依存の場合の関係と一致し、サンプラーの空気取入口の日射加熱等から予測される人為的な熱拡散分別から予測される関係とは明らかに異なる関係を示した。これらの結果から、本研究によって成層圏における大気主成分重力分離が初めて捉えられたことが示された。

重力分離の指標として、 $\delta(\text{Ar}/\text{N}_2)/12$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}/2$ および $\delta^{40}\text{Ar}/4$ の平均値を δ 値として定義した。 δ 値を用いて $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ および CO_2 濃度の観測値に重畳している重力分離を評価した結果、存在量に対して大気中での変動が極めて小さい成分の成層圏大気中における変動を議論する場合には、重力分離の影響が無視できないことが明らかになった。2 次元大気化学輸送モデルを用いた δ 値と CO_2 age のシミュレーションから、温暖化に伴う Brewer-Dobson 循環の強化が生じた場合には、 δ 値と CO_2 age の関係が現在の循環の状態における関係から大きく変化することが明らかになり、重力分離が中層大気循環の長期変動を検出するための新たな指標となり得ることが示された。また観測された δ 値と CO_2 age の関係は、Brewer-Dobson 循環の強化が生じた場合に予測される変化の方向とは逆方向に変化しており、温暖化の進行にも関わらず中部成層圏の Brewer-Dobson 循環が変化していないかむしろやや弱まる傾向にある可能性が示された。

本研究により、重力分離と CO_2 age の同時観測が中層大気循環研究において新たな情報をもたらすことが明らかになった。そのため、大気球を用いた成層圏大気のカイオジェニックサンプリング実験を長期広域に亘って継続・展開することが、気候変動と大気循環変動の関係を解明する上で極めて重要な課題となる。

謝辞

成層圏大気試料の採取のために多大なるご尽力を頂きました宇宙航空研究開発機構 宇宙科学研究所 大気球実験室の皆様へ感謝致します。

参考文献

- 1) S. Aoki, T. Nakazawa, T. Machida, S. Sugawara, S. Morimoto, G. Hashida, T. Yamanouchi, K. Kawamura and H. Honda; “Carbon dioxide variations in the stratosphere over Japan, Scandinavia and Antarctica,” *Tellus*, 55B, pp. 178-186 (2003).
- 2) J. Austin and F. Li; “On the relationship between the strength of the Brewer–Dobson circulation and the age of stratospheric air,” *Geophys. Res. Lett.*, 33, L17807, doi:10.1029/2006GL026867 (2006).
- 3) M. L. Bender, P.P. Tans, J. T. Ellis, J. Orchard and K. Habfast; “High precision isotope ratio mass spectrometry method for measuring the O₂/N₂ ratio of air,” *Geochim. Cosmochim. Acta*, 58, pp. 4751–4758 (1994).
- 4) M. L. Bender, D. T. Ho, M. B. Hendricks, R. Mika, M. O. Battle, P.P. Tans, T. J. Conway, B. Sturtevant and N. Cassar; “Atmospheric O₂/N₂ changes, 1993-2002: Implications for the partitioning of fossil fuel CO₂ sequestration,” *Global Biogeochem. Cycles*, 19, GB4017, doi:10.1029/2004GB002410 (2005).
- 5) R. H. Bieri, M. Koide, E. A. Martell and T. G. Scholz; “Noble gases in the atmosphere between 43 and 63 kilometers,” *J. Geophys. Res.*, 75, pp. 6731-6735 (1970).
- 6) T. W. Blaine, R. F. Keeling and W. J. Paplawsky; “An improved inlet for precisely measuring the atmospheric Ar/N₂ ratio,” *Atmos. Chem. Phys.*, 6, pp. 1181-1184 (2006).
- 7) H. Bönisch, A. Engel, Th. Birner, P. Hoor, D. W. Tarasick and E. A. Ray; “On the structural changes in the Brewer-Dobson circulation after 2000,” *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 3937–3948, www.atmos-chem-phys.net/11/3937/2011/doi:10.5194/acp-11-3937-2011 (2011).
- 8) A. Brewer; “Evidence for a world circulation provided by the measurement of helium and water vapor in the stratosphere,” *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 75, pp. 351-363 (1949).
- 9) S. Chabrilat, G. Kockarts and D. Fonteyn; “Impact of molecular diffusion on the CO₂ distribution and the temperature in the mesosphere,” *Geophys. Res. Lett.*, 29 (15), 10.1029/2002GL015309 (2002).
- 10) A. Engel, T. Möbius, H. Bönisch, U. Schmidt, R. Heinz, I. Levin, E. Atlas, S. Aoki, T. Nakazawa, S. Sugawara, F. Moore, D. Hurst, J. Elkins, S. Schauffler, A. Andrews and K. Boering; “Age of stratospheric air unchanged within uncertainties over the past 30 years,” *Nature Geoscience*, 2, pp. 28–31, doi:10.1038/Ngeo388 (2009).
- 11) T. Gamo, M. Tsutsumi, H. Sakai, T. Nakazawa, M. Tanaka, H. Honda, H. Kubo and T. Itou; “Carbon and oxygen isotopic ratios of carbon dioxide of a stratospheric profile over Japan,” *Tellus*, 41B, pp. 127-133 (1989).
- 12) D. Goto, S. Morimoto, S. Ishidoya, A. Ogi, S. Aoki and T. Nakazawa; “Development of a high precision continuous measurement system for the atmospheric O₂/N₂ ratio and its application at Aobayama, Sendai, Japan,” *J. Meteorol. Soc. Japan*, 91, pp. 179-192 (2013).
- 13) K. E. Grew and L. T. Ibbs; “Thermal Diffusion in Gases,” Cambridge Univ. Press., New York (1952).
- 14) H. Honda; “Balloon-borne cryogenic whole air sampling system,” The Institute of Space and Astronautical Science, Sagami-hara, Japan (1990).
- 15) H. Honda, S. Aoki, T. Nakazawa, S. Morimoto and N. Yajima; “Cryogenic air sampling system for measurements of the concentrations of stratospheric trace gases and their isotopic ratios over Antarctica,” *J. Geomagn. Geoelectr.*, 48, pp. 1145-1155 (1996).
- 16) T. Huang, S. Walters, G. Brasseur, D. Hauglustaine and W. Wu; “Description of SOCRATES - A chemical dynamical radiative two-dimensional model,” NCAR/TN-440+EDD NCAR TECHNICAL NOTE (1998).
- 17) S. Ishidoya, S. Aoki and T. Nakazawa; “High precision measurements of the atmospheric O₂/N₂ ratio on a mass spectrometer,” *J. Meteorol. Soc. Japan*, 81, pp. 127-140 (2003).
- 18) S. Ishidoya, S. Sugawara, G. Hashida, S. Morimoto, S. Aoki, T. Nakazawa and T. Yamanouchi; “Vertical profiles of the O₂/N₂ ratio in the stratosphere over Japan and Antarctica,” *Geophys. Res. Lett.*, 33, L13701, doi:10.1029/2006GL025886 (2006).
- 19) S. Ishidoya, S. Sugawara, S. Morimoto, S. Aoki and T. Nakazawa; “Gravitational separation of major atmospheric components of nitrogen and oxygen in the stratosphere,” *Geophys. Res. Lett.*, 35, L03811, doi:10.1029/2007GL030456 (2008a).
- 20) S. Ishidoya, S. Morimoto, S. Sugawara, T. Watai, T. Machida, S. Aoki, T. Nakazawa and T. Yamanouchi; “Gravitational separation suggested by O₂/N₂, $\delta^{15}\text{N}$ of N₂, $\delta^{18}\text{O}$ of O₂, Ar/N₂ observed in the lowermost part of the stratosphere at northern middle and high latitudes in the early spring of 2002,” *Geophys. Res. Lett.*, 35, L03812, doi:10.1029/2007GL031526 (2008b).

- 21) S. Ishidoya, S. Aoki, D. Goto, T. Nakazawa, S. Taguchi and P. K. Patra; “Time and space variations of the O₂/N₂ ratio in the troposphere over Japan and estimation of global CO₂ budget, *Tellus B*, 64, 18964, <http://dx.doi.org/10.3402/tellusb.v64i0.18964> (2012a).
- 22) S. Ishidoya, S. Morimoto, S. Aoki, S. Taguchi, D. Goto, S. Murayama and T. Nakazawa; “Oceanic and terrestrial biospheric CO₂ uptake estimated from atmospheric potential oxygen observed at Ny-Alesund, Svalbard, and Syowa, Antarctica,” *Tellus* 64B, 18924, <http://dx.doi.org/10.3402/tellusb.v64i0.18924> (2012b).
- 23) S. Ishidoya, S. Sugawara, S. Morimoto, S. Aoki, T. Nakazawa, H. Honda, and S. Murayama; “Gravitational separation in the stratosphere – a new indicator of atmospheric circulation,” *Atmos. Chem. Phys.*, 13, pp. 8787–8796, www.atmos-chem-phys.net/13/8787/2013/, doi:10.5194/acp-13-8787-2013 (2013).
- 24) S. Ishidoya and S. Murayama; “Development of a new high precision continuous measuring system for atmospheric O₂/N₂ and its application to the observation in Tsukuba, Japan,” *Tellus* 66B, 22574, <http://dx.doi.org/10.3402/tellusb.v66.22574> (2014).
- 25) D. J. Jacob; “Introduction to Atmospheric Chemistry,” Princeton University Press (1999).
- 26) Y. Kawatani and K. Hamilton; “Weakened stratospheric quasibiennial oscillation driven by increased tropical mean upwelling,” *Nature* 497, pp. 478–481; doi:10.1038/nature12140 (2013).
- 27) R. F. Keeling; “Development of an interferometric oxygen analyzer for precise measurement of the atmospheric O₂ mole fraction,” Ph.D. thesis, Harvard University, Cambridge (1988).
- 29) R. F. Keeling, S. C. Piper, A. F. Bollenbacher and J. S. Walker; “Atmospheric CO₂ records from sites in the SIO air sampling network,” In *Trends: A Compendium of Data on Global Change. Carbon Dioxide Information Analysis Center*, Oak Ridge National Laboratory, U.S. Department of Energy, Oak Ridge, Tenn., U.S.A. doi: 10.3334/CDIAC/atg.035 (2009).
- 30) R. Khosravi, G. Brasseur, A. Smith, D. Rusch, S. Walters, S. Chabrilat, and G. Kockarts; “Response of the mesosphere to human-induced perturbations and solar variability calculated by a 2-D model,” *J. Geophys. Res.*, 107 (D18), 4358, doi:10.1029/2001JD001235, (2002).
- 31) H. Lettau; “Diffusion in the upper atmosphere, *Compendium of Meteorology*,” American Meteorological Society, Boston (1951).
- 32) F. Li, J. Austin and J. Wilson; “The Strength of the Brewer–Dobson Circulation in a changing climate,” *Coupled chemistry–climate model simulations*, *J. Climate*, 21, pp. 40–57, doi: 10.1175/2007JCLI1663.1 (2008).
- 33) A. C. Manning and R. F. Keeling; “Global oceanic and land biotic carbon sinks from the Scripps atmospheric oxygen flask sampling network,” *Tellus*, 58B, pp. 95–116 (2006).
- 34) S. T. Massie and D. M. Hunten; “Stratospheric eddy diffusion coefficients from tracer data,” *J. Geophys. Res.*, 86 (C10), pp. 9859–9868 (1981).
- 35) J. Miller and P. Tans; “Calculating isotopic fractionation from atmospheric measurements at various scales,” *Tellus*, 55B, pp. 207–214 (2003).
- 36) T. Nakazawa, T. Machida, S. Sugawara, S. Murayama, S. Morimoto, G. Hashida, H. Honda and T. Itoh; “Measurements of the stratospheric carbon dioxide concentration over Japan using a Balloon - borne cryogenic sampler,” *Geophys. Res. Lett.*, 22, No. 10, P. 1229, doi:10.1029/95GL01188 (1995).
- 37) T. Nakazawa, S. Morimoto, S. Aoki and M. Tanaka; “Temporal and spatial variations of the carbon isotopic ratio of atmospheric carbon dioxide in the western Pacific region,” *J. Geophys. Res.*, 102, pp. 1271–1285 (1997).
- 38) D. Offerman, V. Friedrich, P. Ros, and U. von Zahn; “Neutral gas composition measurements between 80 and 120 km,” *Planet. Space Sci.*, 29, pp. 747–764 (1981).
- 39) J. H. Park, M. K. W. Ko, C. H. Jackman, R. A. Plumb, J. A. Kaye, K. H. Sage; “Models and Measurements Intercomparison II,” NASA/TM-1999-209554, <http://www.cs.odu.edu/~mln/ltrs-pdfs/NASA-99-tm209554.pdf>. (1999).
- 40) E. A. Ray, F. L. Moore, K. H. Rosenlof, S. M. Davis, H. Boenisch, O. Morgenstern, D. Smale, E. Rozanov, M. Hegglin, G. Pitari, E. Mancini, P. Braesicke, N. Butchart, S. Hardiman, F. Li, K. Shibata and D. A. Plummer; “Evidence for changes in stratospheric transport and mixing over the past three decades based on multiple data sets and tropical leaky pipe analysis,” *J. Geophys. Res.*, 115, D21304, doi:10.1029/2010JD014206 (2010).

- 41) G. P. Stiller, T. Von Clarmann, F. Haenel, B. Funke, N. Glatthor, U. Grabowski, S. Kellmann, M. Kiefer, A. Linden, S. Lossow and M. López-Puertas; “Observed temporal evolution of global mean age of stratospheric air for the 2002 to 2010 period,” *Atmos. Chem. Phys.*, 12, pp. 3311–3331, doi:10.5194/acp-12-3311-2012 (2012).
- 42) S. Sugawara, T. Nakazawa, Y. Shirakawa, K. Kawamura, S. Aoki, T. Machida and H. Honda; “Vertical profile of the carbon isotopic ratio of stratospheric methane over Japan,” *Geophys. Res. Lett.*, 24, pp. 2989-2992 (1997).
- 43) Y. Tohjima, H. Mukai, Y. Nojiri, H. Yamagishi and T. Machida; “Atmospheric O₂/N₂ measurements at two Japanese sites: estimation of global oceanic and land biotic carbon sinks and analysis of the variations in atmospheric potential oxygen (APO),” *Tellus* 60B, pp. 213-225 (2008).
- 44) S. Toyoda, N. Yoshida, T. Urabe, Y. Nakayama, T. Suzuki, K. Tsuji, K. Shibuya, S. Aoki, T. Nakazawa, S. Ishidoya, K. Ishijima, S. Sugawara, T. Machida, G. Hashida, S. Morimoto and H. Honda; “Temporal and latitudinal distributions of stratospheric N₂O isotopomers,” *J. Geophys. Res.*, 109, D08308, doi:10.1029/2003JD004316 (2004).
- 45) D. W. Waugh and T. M. Hall; “Age of stratospheric air: Theory, observations, and models,” *Rev. Geophys.*, 40, no. 4, 1010, doi:10.1029/2000RG000101 (2002).